УДК 621.039.59

РЕАЛИЗАЦИЯ ПРОГРАММЫ "ВОУ-НОУ" НА СХК

В.М. Короткевич, В.В. Лазарчук

Разработана технологическая схема перевода высокообогащенного урана из металла в его гексафторид и разбавления его ураном с низким содержанием изотопа урана-235.

Сокращение имеющегося в арсенале ядерного оружия приводит к освобождению значительных количеств оружейных урана и плутония. В связи с этим возникла проблема использования этих материалов в мирных целях.

Одним из основных путей утилизации высокообогащенного урана (ВОУ), каким является оружейный уран, в настоящее время считается использование его в качестве топлива в энергетических ядерных реакторах для производства тепловой и электрической энергии [1].

Поскольку в энергетических ядерных реакторах используется низкообогащенный уран (НОУ), а для ядерных зарядов применяется высокообогащенный уран, необходимо создание нового производства для изотопного разбавления утилизируемого урана. В этом процессе явными преимуществами обладает смешивание в газовой фазе гексафторидов урана высокого (оружейного) и низкого обогащений по изотопу урана-235, так как:

- во-первых, для выполнения этой операции наилучшим образом подходит уже имеющееся оборудование и организация производства на заводах по разделению изотопов урана. Это дает возможность относительно просто обеспечить условия ядерной безопасности, точное дозирование смешиваемых продуктов и оперативное управление процессом смешивания;
- во-вторых, действующие заводы по производству ядерного топлива для реакторов приспо-

соблены к получению таблетированного диоксида урана именно из гексафторида урана;

- в-третьих, получение кондиционного по содержанию изотопа урана-234 НОУ возможно только смешением ВОУ с разбавителем, наработанным из отвалов разделительных производств, обедненных по содержанию изотопа уран-235, хранящихся в виде гексафторида урана.

Создание производств для конверсии оружейного металлического урана в гексафторид низкообогащенного энергетического урана было вызвано тем, что в 1994 г. Минатом РФ принял на себя международные обязательства по переводу части отечественного оружейного урана в сырье для получения энергетического топлива [1]. В 1996 году на Сибирском химическом комбинате освоена промышленная крупномасштабная переработка ВОУ из ядерного оружия в энергетический НОУ для ядерного топлива, который по своим характеристикам полностью соответствует требованиям стандартной спецификации ASTM C996-96 для урана обогащением менее 5 % по урану-235, полученного из коммерческого природного урана.

Исполнительным контрактом, заключенным между ОАО "Техснабэкспорт" и корпорацией ЮСЕК, установлены весьма жесткие ограничения на содержание ряда нуклидов в поставляемом гексафториде низкообогащенного урана, они представлены в табл. 1.

Таблица 1. *Предельно-допустимые содержания радионуклидов и примесей в низкообогащенном уране в соответствии с исполнительным контрактом с ЮСЕК (США) [1]*

Радионуклиды и примеси	Единицы измерений	Содержание
Уран-232	%	$2 \cdot 10^{-8}$
Уран-234	мкг/г (U-235)	< 10000
Уран36	%	< 0,025
Технеций-99	мкг/г U	< 0,01
Плутоний	Бк/г U	< 0,05
Нептуний	Бк/г U	< 0.01
Бор	%	$< 4 \cdot 10^{-4}$
Кремний	%	$< 2,5 \cdot 10^{-2}$
Продукты деления урана	МэВ·Бк/г U	< 21

Исходя из этих требований, была разработана технологическая схема перевода оружейного высокообогащенного урана из металла в его гексафторид и разбавления его ураном с низким содержанием изотопа урана-235, которая включает следующие основные переделы:

- окисление металлического оружейного урана;
- экстракционную очистку оксидов высокообогащенного урана от плутония, нептуния, продуктов распада нуклидов и легирующих добавок;
- переработку оксидов урана в гексафторид урана путем их прямого фторирования элементным фтором;
- наработку из гексафторида урана отвальной (обедненной) кондиции разбавителя с содержанием 1,5 % изотопа урана-235 и пониженным содержанием изотопа урана-234; смешивание разбавителя с гексафторидом ВОУ с целью получения низкообогащенного энергетического гексафторида урана с заданным содержанием изотопа урана-235.

Блок-схема переработки оружейного урана в низкообогащенный гексафторид урана коммерческого качества представлена на рис. 1.

Несмотря на имеющийся на СХК значительный опыт в химической технологии высокообогащенного урана и его гексафторида, создание производства получения НОУ из оружейного требуемого масштаба с соблюдением современных требований по экологии и охране труда явилось новой задачей с точки зрения аппаратурно-технологического оформления, контроля за ведением технологического процесса, аналитического контроля, обеспечения радиационной безопасности. Потребовались разработки более совершенных и производительных образцов технологического оборудования, а также новых высокопроизводительных методов анализа урана на содержание плутония и других микропримесей.

Первая часть промышленной технологической схемы переработки оружейного ВОУ в энергетический НОУ - водно-химическая, связана с очисткой урана от плутония, продуктов распада нуклидов и других примесей. Для решения поставленных задач была разработана и внедрена усовершенствованная экстракционно-осадительная схема, представленная на рис. 2.

Промышленная эксплуатация этой схемы показала, что получаемый продукт характеризуется достаточной чистотой по примесям и пригоден для дальнейшей переработки в гексафторид урана. В частности, эта часть технологии обеспечивает коэффициент очистки урана от плутония не менее 600.

Кроме того, за период испытаний и промышленной эксплуатации данной схемы достигнуто повышение ряда технико-экономических показателей за счет:

- введения дополнительной фильтрации на патронных фильтрах и тем самым снижения содержания взвешенных частиц твердой фазы в исходном растворе до 10 мг/л; устранения нежелательных последствий образования третьей жидкой фазы;
- внедрения процесса электрохимического восстановления урана и плутония, совмещенного с фильтрацией на нутч-фильтрах, позволившего регулировать концентрацию этих компонентов в экстракционном каскаде;

- повышения насыщения экстракта ураном до 95...100 % от предельного;
- оптимизации режима растворения оксидов урана и получения более концентрированного раствора;
- изменения порядка переработки дренажных растворов и режима корректировки концентрации ТБФ в экстракте.

Применение карбамида в реэкстрагенте с концентрацией до ~300 г/л позволило увеличить соотношение фаз на реэкстракции примерно в 1,5 раза, при этом концентрация урана в реэкстрактах, направляемых на осаждение, увеличилась приблизительно в 3 раза и, соответственно, сократился их объем. Вследствие увеличения насыщения экстракта ураном снизилась концентрация азотной кислоты в реэкстрактах, что привело к сокращению расхода аммиака на ее нейтрализацию. В результате увеличения концентрации урана в реэкстрактах улучшились характеристики осадков аммиачных солей, уменьшилась влажность до ~20 %, плотность товарного октаоксида триурана увеличилась с 2,2 до 2,8 г/см^3. Реализация этих мероприятий привела к существенному сокращению эксплуатационных затрат и стабилизации процесса получения гексафторида ВОУ.

Экономический эффект от внедрения этих разработок составил 11 млн руб.

Основная задача второй химической стадии схемы, газофторидной, заключается в переработке оксидов урана в гексафторид урана путем их прямого фторирования элементным фтором и окончательной очистке урана от плутония и радионуклидов.

Творческой и практической основой для создания схемы послужил более чем 30-летний опыт разработки и эксплуатации технологических установок СХК, на которых газофторидным методом перерабатывались отходы и обороты оружейного высокообогащенного урана химико-металлургического производства.

Технологическая схема этого передела ВОУ в НОУ приведена на рис. 3.

На фторирование поступают порошкообразная закись-окись урана и фтор, предварительно прошедший очистку от фтористого водорода методом сорбции последнего на гранулах фторида натрия. Процесс фторирования осуществляют в непрерывном режиме при противотоке твердой и газообразной фаз реагентов. Остатки от фторирования ("огарки"), в которых концентрируются нелетучие фториды продуктов распада радионуклидов, про-

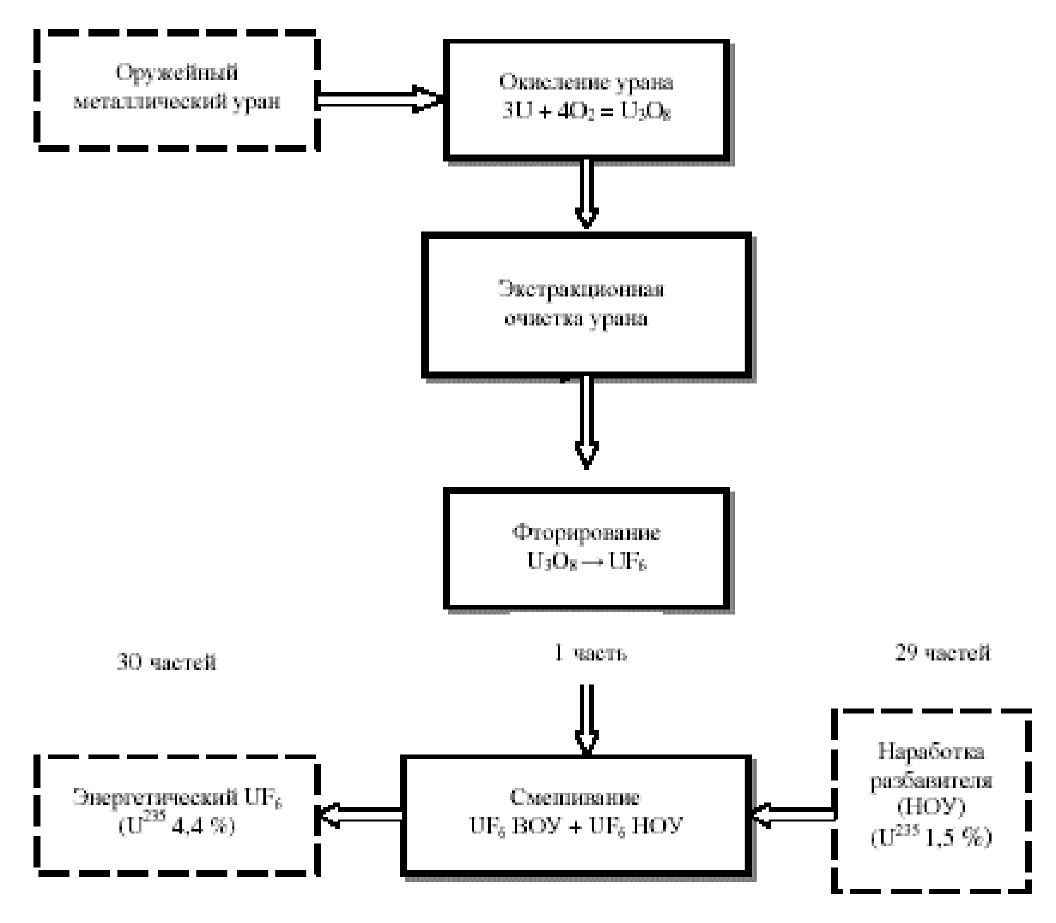


Рис. 1. *Промышленная технологическая схема переработки оружейного ВОУ в энергетический НОУ*

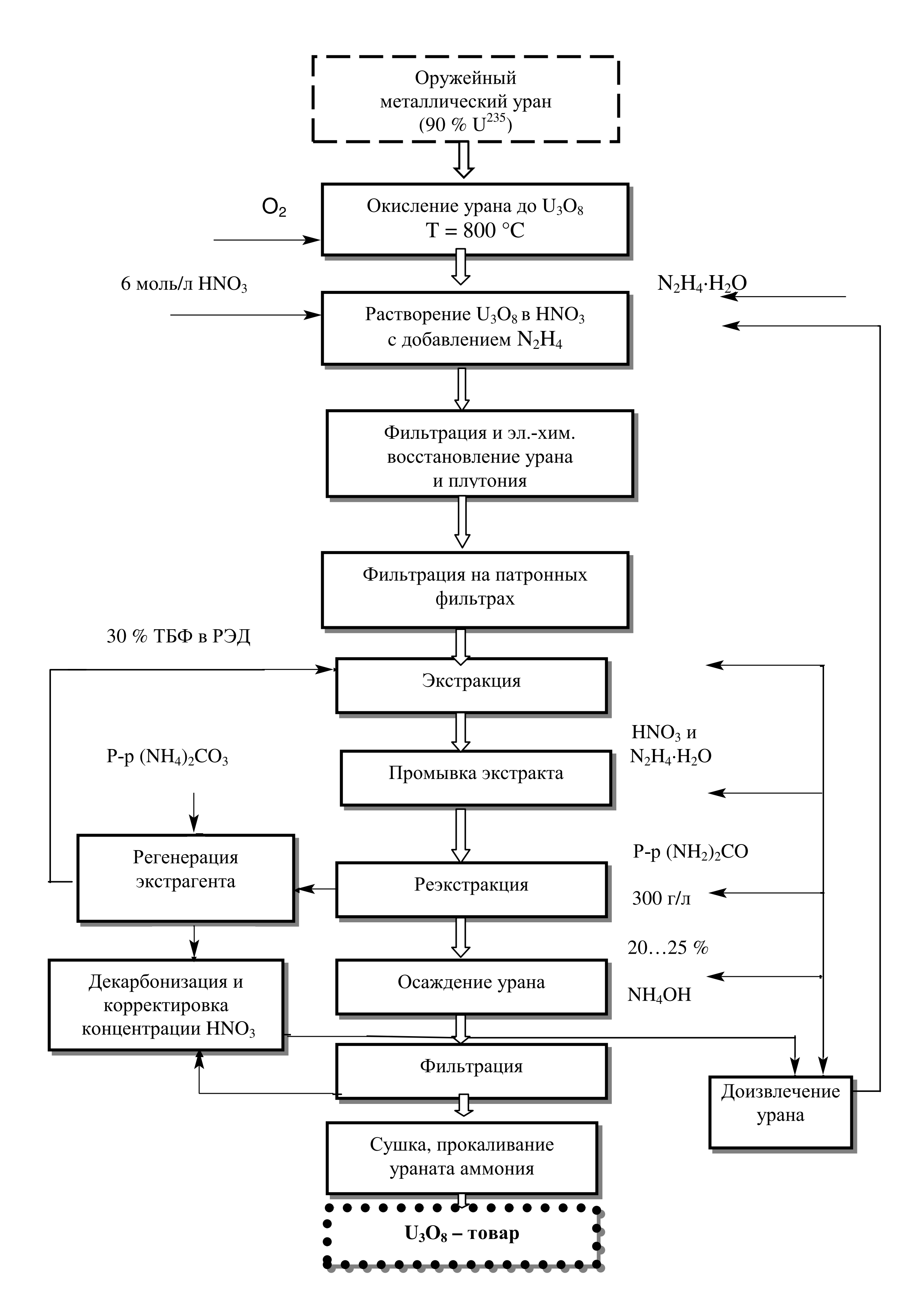


Рис. 2. *Схема экстракционного аффинажа оружейного урана*

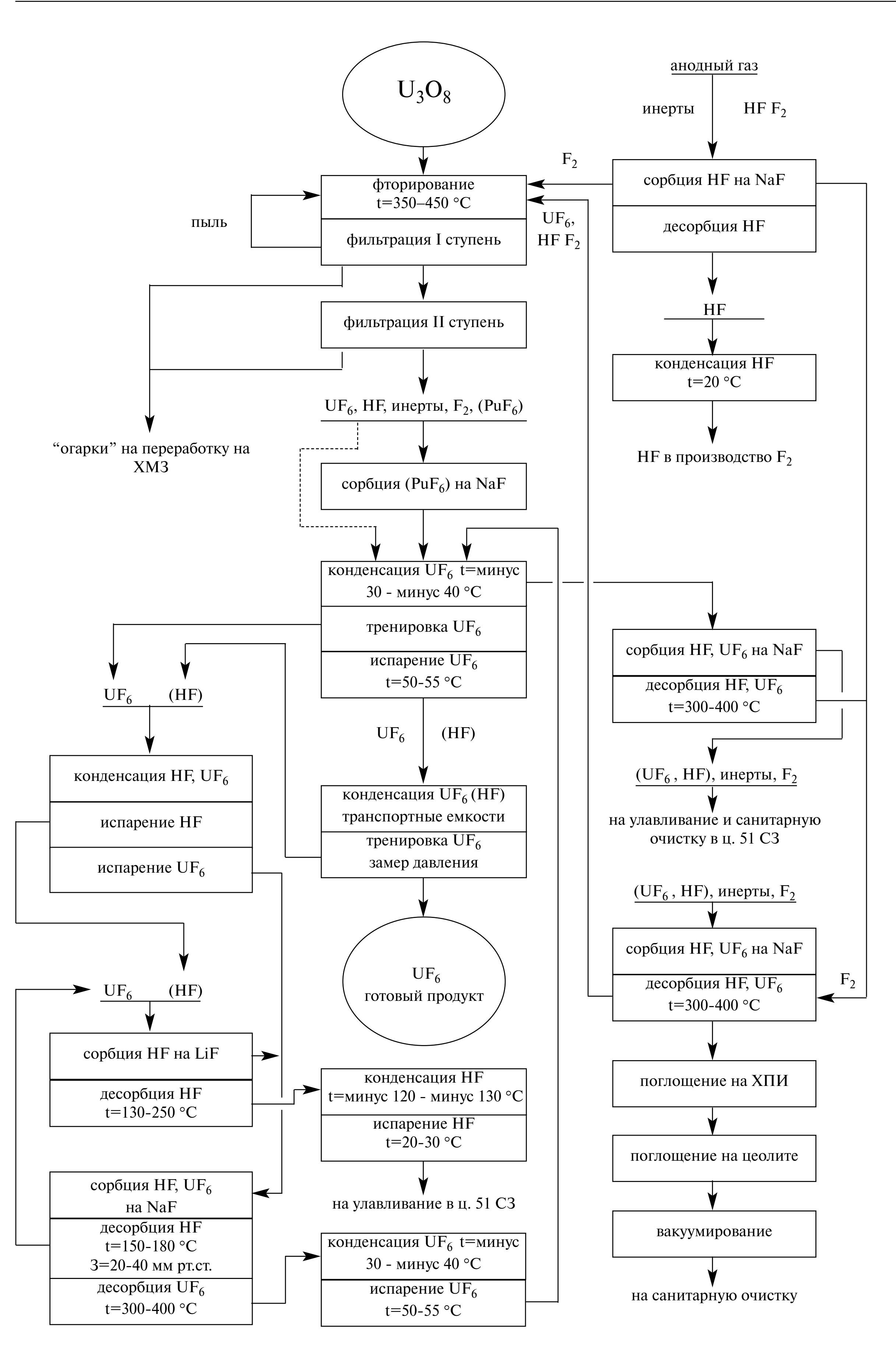


Рис. 3. *Принципиальная технологическая схема установки фторирования*

дуктов коррозии оборудования, нелетучие фториды плутония, после переработки определенного количества исходных оксидов урана, выгружают из фторатора и направляют для дальнейшей переработки на передел экстракционного аффинажа оружейного урана.

Газовая фаза после реактора проходит двухступенчатую фильтрацию и поступает на десублимацию гексафторида урана. Кроме того, на одной из технологических ниток перед десублимацией UF_6 газовый поток проходит сорбционную колонну с фторидом натрия, в которой селективно сорбируется гексафторид плутония, образующийся в процессе фторирования оксидов урана, что позволяет перерабатывать оксиды ВОУ с повышенным содержанием плутония. Коэффициенты очистки урана от плутония на газофторидном переделе составляют $10^3...10^4$.

Собранный в десублиматоре гексафторид урана подвергается вакуумной "тренировке" с целью удаления из него фтористого водорода, после чего гексафторид урана переконденсируется в транспортные емкости и отправляется потребителю. Технологические газы после десублиматора проходят глубокую очистку от гексафторида урана путем его улавливания на гранулах фтористого натрия, десорбированный гексафторид урана возвращается в схему.

Продукты, образовавшиеся в результате "вакуумной" тренировки гексафторида урана в десублиматорах и состоящие из фтористого водорода и гексафторида урана, разделяют на компоненты методом избирательной сорбции фтористого водорода на фториде лития. Поскольку контрактом было определено, что α-активность по плутонию должна находиться ниже порога обнаружения методик, используемых американской стороной, который составлял 0,05 Бк/г U, были разработаны новые методики определения плутония в уране с чувствительностью 0,003 Бк/г U. Используя эти методики определения, было установлено распределение плутония по стадиям технологической схемы переработки ВОУ. Величины коэффициентов очистки урана от плутония на различных стадиях передела приведены в табл. 2 [5].

Результаты более чем пятилетней эксплуатации производства показали, что оно полностью обеспечивает необходимую производительность, а качество получаемого гексафторида урана соответствует не только требованиям, приведенным в табл. 1, но и нормам на содержание ряда элементов, дающих летучие фториды [2, 3]. Коэффициенты очистки урана на газофторидном переделе составляют от:

- фосфора, молибдена, вольфрама - 20;
- ванадия - 15;
- хрома - 10;
- кремния - 4,

что свидетельствует о высоком аффинажном потенциале газофторидной технологии.

Таблица 2. *Коэффициенты очистки урана от плутония на различных стадиях передела*

№ п/п	Наименование передела	Коэффициент очистки
1	Водно-экстракционный передел	600
2	Газофторидный передел	
2.1	Фторирование + две ступени фильтрации газов (без сорбции плутония)	10^3
2.2	Сорбция плутония на фториде натрия	10
3	Суммарный коэффициент очистки высокообогащенного урана от плутония	$6{\cdot}10^6$

Вопросы безопасной эксплуатации производства решены тем, что всё технологическое и вспомогательное оборудование является вакуумноплотным и имеет ядерно-безопасную геометрию, обеспечено дистанционной и автоматической системами управления. Размещение оборудования выполнено в трехзональном исполнении.

Эксплуатация технологической схемы газофторидного передела обеспечивается постоянным научным сопровождением.

Эти исследования позволили решить вопросы:

- качества получаемой продукции;
- снижения безвозвратных потерь высокообогащенного урана;
- увеличения коэффициента выхода урана в готовую продукцию.
- увеличения производительности технологического оборудования сверх проектной на 30 %, что позволило высвободить одну из трех технологических ниток для других производственных целей.

Экономический эффект от внедрения результатов исследований по газофторидному переделу составил 18 млн руб.

Третья часть схемы - наработка разбавителя и смешивание его с гексафторидом ВОУ. Здесь используется одностадийный технологический процесс смешивания гексафторидов ВОУ и разбавителя в газовой фазе (рис. 4). Дозирование потоков осуществляется с помощью критических диафрагм, давление перед которыми поддерживается регуляторами, управляемыми микропроцессорами. Заданная концентрация урана-235 поддерживается регулированием расхода по потоку ВОУ или разбавителя с помощью изменения давления перед критической диафрагмой. Необходимая точность регулирования достигается тем, что изменение величины потока ВОУ или разбавителя производится по сигналу о значении концентрации урана-235 в по-

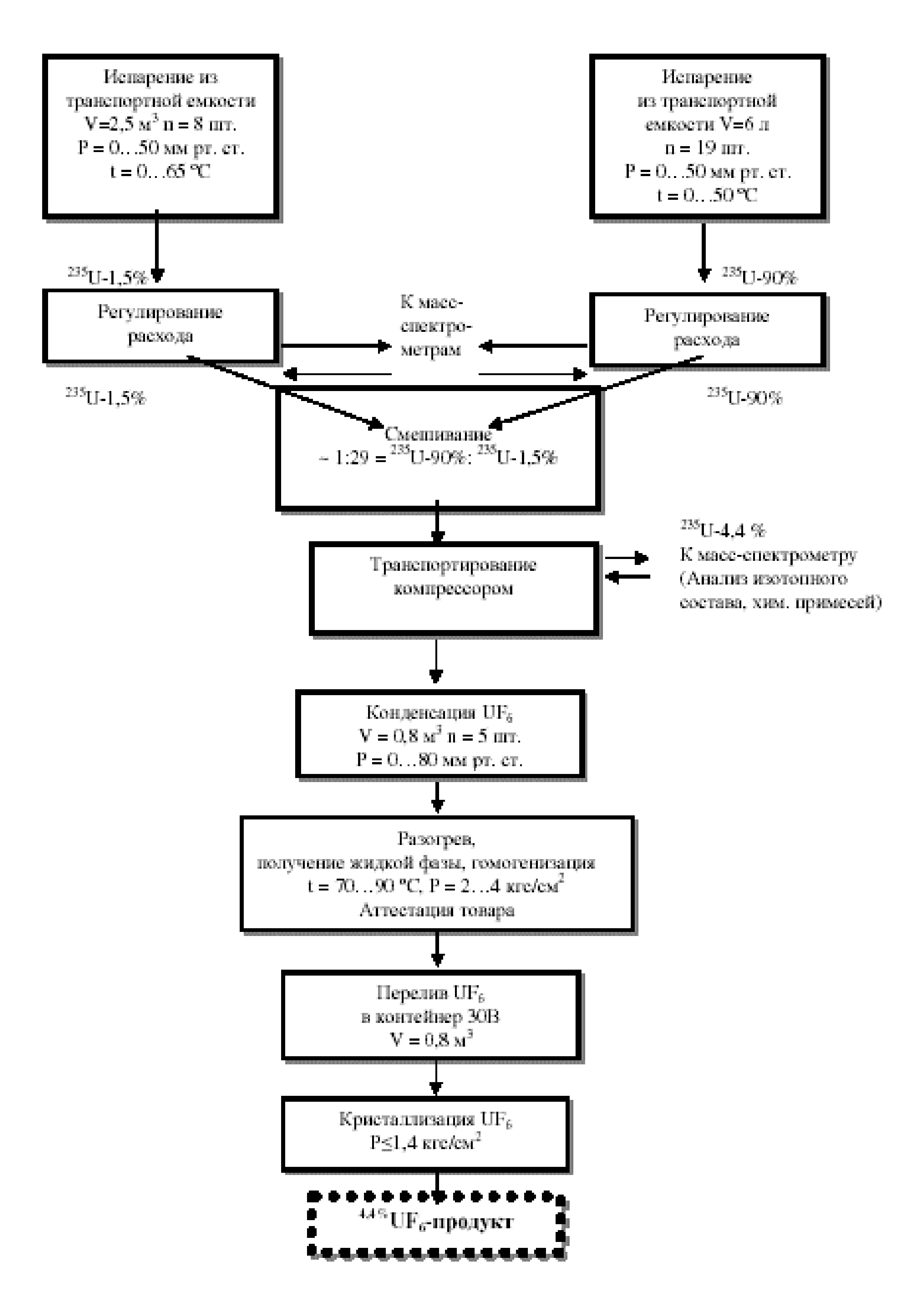


Рис. 4. *Принципиальная технологическая схема смешивания ВОУ с НОУ-разбавителем*

токе НОУ (продукта), определяемой масс-спектрометрически. Регулирование позволяет поддерживать среднее значение содержания урана-235 в НОУ в заданных пределах с отклонением не более 0,1 % отн.

С помощью компрессоров смешанный продукт подается на конденсацию в технологические емкости. Заполненные емкости устанавливаются в автоклав, и после плавления и гомогенизации гексафторида НОУ расплав переливается в транспортные контейнеры, которые направляются потребителю.

Вся технологическая схема снабжена автоматическими устройствами аварийной защиты, системами контроля давления и контроля изотопного состава. Контроль изотопного состава проводится без отбора проб (на "протоке") с помощью автоматического масс-спектрометра МИ 1201 АГМ.

За период эксплуатации оборудования данного передела с 1997 по 2002 гг. был выполнен комплекс работ, направленных на совершенствование схем автоматизации управления технологическим процессом смешения, повышения точности поддержания параметров. Общий экономический эффект от внедрения этих мероприятий составил 43 млн руб.

За все время опытной и промышленной эксплуатации производств переработки оружейного урана в энергетический НОУ не было ни одного случая отклонения концентраций изотопов урана, плутония и других примесей, заданных контрактом с американской корпорацией ЮСЕК, что свидетельствует о высокой надежности разработанных технологических схем переработки оружейного ВОУ в энергетический НОУ.

В заключение необходимо отметить, что в ходе научных исследований, проведенных в рамках научного сопровождения технологии переработки ВОУ, были решены вопросы:

- качества получаемой продукции по всем переделам технологической схемы;
- снижения безвозвратных потерь ВОУ;
- увеличения коэффициента выхода урана в готовую продукцию;
- увеличения производительности переделов технологической схемы сверх проектной, что позволило значительно улучшить технико-экономические показатели процесса.

Практическая реализация результатов научных исследований позволила получить экономический эффект более 72 млн руб.

Эти исследования не решили всех проблем, возникших в процессе эксплуатации производств, но позволили улучшить существенным образом многие показатели их работы.

В заключение еще раз отмечаем, что на СХК внедрена уникальная технология переработки оружейного ВОУ в низкообогащенный уран, который по своим параметрам удовлетворяет требованиям спецификации ASTM C996-96, предъявляемым к низкообогащенному урану, получаемого из коммерческого природного урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Микерин Е.И. Российская промышленная переработка ВОУ из ядерного оружейного в энергетический НОУ, соответствующий требованиям спецификации ASTM C996-90 для обогащенного урана, полученного из коммерческого природного урана. // Доклад на симпозиуме ASTM, 3 июля 1996 г. Балтимор (США).
2. Акишин В.С., Гущин А.А., Лазарчук В.В., Малый Е.Н., Мариненко Е.П., Сапожников В.Г., Хохлов В.А. и др. Совершенствование технологии и оборудования переработки высокообогащенного урана по заказу "4-4". Физико-химические основы и промышленное использование газофторидной технологии высокообогащенного урана. Заключительный отчет. Инв. 8/ 3189т. - Северск, 2001.
3. Акишин В.С., Лазарчук В.В., Малый Е.Н., Мариненко Е.Н., Хохлов В.А. и др. Опыт промышленной эксплуатации и совершенствование установки М-2079 получения гексафторида высокообогащенного урана в технологии утилизации оружейного урана // Матер. 6-й научно-техн. конф. Сибирского химического комбината. Часть 1. - Северск, 2001.
4. Патент 2159742 РФ. Способ переработки смеси гексафторида урана с фтористым водородом / В.С. Акишин, Л.Г. Бахматова, В.В. Лазарчук, Е.Н. Малый, Е.П. Мариненко, А.А. Матвеев, А.И. Рудников, В.А. Хохлов, А.М. Кораблев.
5. Лазарчук В.В. Исследования и оптимизация технологических процессов очистки, конденсации и улавливания гексафторида урана из сбросных газов на промышленной установке М2079, предназначенной для фторирования высокообогащенного урана. Дис. на соиск. уч. степ. ... канд. техн. наук. - Северск, 2000.